

PCT

WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM
Internationales Büro



INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation ⁷ : B01J 8/22, 10/00, 19/24		A1	(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 00/30743 (43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 2. Juni 2000 (02.06.00)
(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP99/09059 (22) Internationales Anmeldedatum: 23. November 1999 (23.11.99) (30) Prioritätsdaten: 198 54 637.8 26. November 1998 (26.11.98) DE (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): BASF AKTIENGESellschaft [DE/DE]; D-67056 Ludwigshafen (DE). (72) Erfinder; und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): BERG, Stefan [DE/DE]; Mörscher Strasse 98a, D-67227 Frankenthal (DE). ZEHNER, Peter [DE/DE]; Erich-Kästner-Strasse 15, D-67074 Ludwigshafen (DE). BENFER, Regina [DE/DE]; Akazienweg 23, D-67122 Altrip (DE). MÜLLER, Jörn [DE/DE]; Erwin-Brünisholzweg 10, D-67071 Ludwigshafen (DE). NILLES, Michael [DE/DE]; Bayernstrasse 48, D-67061 Ludwigshafen (DE). SCHULZ, Ralf [DE/DE]; Maulbronner Hof 35, D-67346 Speyer (DE). STÜTZER, Dieter [DE/DE]; Carl-Zimmermann-Strasse 21, D-67373 Dudenhofen (DE).			(74) Anwalt: ISENBRUCK, Günter; Bardehle Pagenberg Dost Altenburg Geissler Isenbruck, Theodor-Heuss-Anlage 12, D-68165 Mannheim (DE). (81) Bestimmungsstaaten: CN, JP, KR, US, europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE). Veröffentlicht Mit internationalem Recherchenbericht. Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche zugelassenen Frist; Veröffentlichung wird wiederholt falls Änderungen eintreffen.

(54) Title: REACTOR FOR CARRYING OUT GAS-LIQUID, LIQUID-LIQUID OR GAS-LIQUID-SOLID CHEMICAL REACTIONS

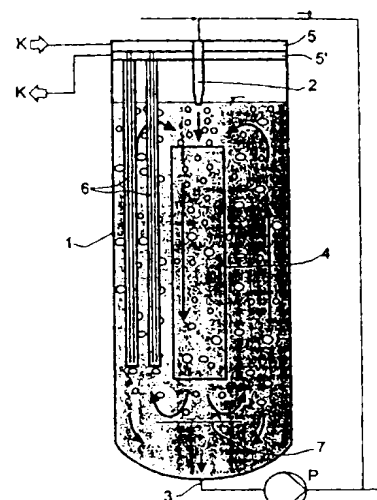
(54) Bezeichnung: REAKTOR ZUR KONTINUIERLICHEN DURCHFÜHRUNG VON GAS-FLÜSSIG-, FLÜSSIG-FLÜSSIG- ODER GAS-FLÜSSIG-FEST-REAKTIONEN

(57) Abstract

The invention relates to a vertical cylinder reactor (1) for carrying out gas-liquid, liquid-liquid or gas-liquid-solid chemical reactions. Said reactor comprises a nozzle (2) which is arranged in the upper portion of the reactor and which is directed downwards and by way of which the educts and the reaction mixture are supplied. The reactor further comprises a discharge (3), preferably in the lower portion of the reactor, through which the reaction mixture can be re-fed to the nozzle (2) via an exterior circuit by way of a pump (P). A concentric guide tube is arranged in the reactor which substantially extends across the entire length of the reactor (1) except the reactor ends. Said guide tube has a cross-sectional area in the range of a tenth to half of the cross-sectional area of the reactor (1). The nozzle is arranged above the upper end of the guide tube (4), preferably in a distance of an eighth to a full cross-sectional area of the guide tube or it dips into the guide tube (4) in a depth of up to several cross-sectional areas of the guide tube. A heat exchanger is integrated into the annulus, especially a heat exchanger with heat exchanger tubes (6) welded between bottoms (6). Said tubes are preferably arranged parallel to the guide tube.

(57) Zusammenfassung

Es wird ein Reaktor (1) in hochzylindrischer Bauform zur kontinuierlichen Durchführung von Gas-Flüssig-, Flüssig-Flüssig- oder Gas-Flüssig-Fest-Reaktionen mit einer im oberen Reaktorbereich angeordneten, nach unten gerichteten Strahldüse (2), über die Edukte und das Reaktionsgemisch zugeführt werden sowie mit einem Abzug (3) bevorzugt im unteren Reaktorbereich, über den das Reaktionsgemisch in einem äußeren Kreislauf mittels einer Pumpe (P) der Strahldüse (2) erneut zugeführt wird, vorgeschlagen, wobei im Reaktor ein konzentrisches Leitrohr angeordnet ist, das sich im wesentlichen über die gesamte Länge des Reaktors (1) mit Ausnahme der Reaktorenden erstreckt und eine Querschnittsfläche im Bereich von einem Zehntel bis zur Hälfte der Querschnittsfläche des Reaktors (1) aufweist, und wobei die Strahldüse oberhalb des oberen Ende des Leitrohrs (4), bevorzugt um ein Achtel des Leitrohrdurchmessers bis zu einem Leitrohrdurchmesser beabstandet, angeordnet ist oder das Leitrohr (4), in eine Tiefe bis zu mehreren Leitrohrdurchmessern, eintaucht. In den Ringraum ist ein Wärmetauscher, insbesondere ein Wärmetauscher mit zwischen Böden (5) eingeschweißten Wärmetauschröhen (6), die vorzugsweise parallel zum Leitrohr angeordnet sind integriert.



LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidschan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland			TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	ML	Mali	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MN	Mongolei	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MR	Mauritanien	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MW	Malawi	US	Vereinigte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	MX	Mexiko		
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CG	Kongo	KE	Kenia	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CM	Kamerun			PL	Polen		
CN	China	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CU	Kuba	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CZ	Tschechische Republik	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
DE	Deutschland	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DK	Dänemark	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
EE	Estland	LR	Liberia	SG	Singapur		

Reaktor zur kontinuierlichen Durchführung von Gas-Flüssig-, Flüssig-Flüssig- oder Gas-Flüssig-Fest-Reaktionen

5

Die Erfindung betrifft einen Reaktor zur kontinuierlichen Durchführung von Gas-Flüssig-, Flüssig-Flüssig- oder Gas-Flüssig-Fest-Reaktionen, ein Verfahren sowie eine Verwendung.

- 10 In vielen chemischen Verfahren sind der Gas-Flüssigkeits-Stoffübergang und die Wärmeabfuhrleistung die geschwindigkeitsbestimmenden Schritte. Zur Verbesserung des Stoffübergangs an der Phasengrenzfläche wurde für derartige Reaktionen die Verwendung von Ejektoren vorgeschlagen, d.h. von Vorrichtungen, die die kinetische Energie eines Flüssigkeitsstrahls hoher Geschwindigkeit zum
- 15 Ansaugen und Dispergieren der Gasphase nutzen. Durch den hohen Energieeintrag wird im Ejektor eine hohe Turbulenz und eine große Scherkraft erzeugt mit der Folge, daß das Gas in Form sehr kleiner Bläschen dispergiert wird, d.h. daß eine sehr hohe volumenspezifische Gas-Flüssigkeits-Grenzfläche erzeugt wird. In der Literatur werden für die volumenspezifische Phasengrenzflächen Werte von 40.000
- 20 bis 70.000 m^2/m^3 im Ejektor beschrieben gegenüber 500 bis 2.500 im gesamten System, d.h. außerhalb des Ejektors (vgl. Chem. Eng. Sci. Vol. 47, No. 13/14 pp. 3557 ff, 1992).

Vorrichtungen zur Durchführung von Gas-Flüssig- oder Gas-Flüssig-Fest-Reaktionen unter Verwendung von Ejektoren sind als Loop-Venturi-Reaktoren

25 bekannt und beispielsweise in

DE-A-4323687 in Verbindung mit einem kontinuierlichen Verfahren zur Herstellung von aromatischen Di- und Polyaminen durch katalytische Hydrierung der entsprechenden Polynitroverbindungen beschrieben. An einem Ende des Loop-Venturi-Reaktors befindet sich der Ejektor, d.h. eine Zweistoff-Strahldüse mit fest

- 2 -

angeordnetem Impulsaustauschrohr und Diffusor, worin flüssiges Umpumpgemisch und gasförmige Reaktanden (Wasserstoff) in Kontakt gebracht werden. Der Ejektor taucht zu einem gewissen Anteil seiner Baulänge durch den Gas-Flüssig-Phasentrennspegel in die Flüssigkeit ein. Im Ejektor selbst ist die
5 Gasdispergierleistung hoch, nicht jedoch im übrigen Reaktorvolumen, das bezüglich des Strömungs- und Verweilzeitverhaltens reine Blasensäulencharakteristik aufweist. In diesem Reaktorvolumen außerhalb des Ejektors halten regellose klein- und großräumige Wirbel mit vergleichsweise geringer Stoffübergangsleistung den Katalysator in suspendiertem Zustand. Der Gasgehalt im Reaktor stellt sich über-
10 wiegend aufgrund der Stoffeigenschaften, in geringem Maße auch aufgrund der Anfangsdispergierung ein. Die freiwerdende Reaktionswärme wird über einen externen Wärmetauscher im Umpumpkreislauf abgeführt.

In EP-A-263 935 werden Rührkesselreaktoren für die Durchführung stark
15 exothermer Reaktionen beschrieben, wobei die freiwerdende Wärme über Fieldrohr-Wärmetauscher am Ort ihrer Entstehung abgeführt wird. Fieldrohr-Wärmetauscher bezeichnen in bekannter Weise Wärmetauscher, die ein Bündel paralleler Doppelmantelrohre aufweisen, wobei die in den Reaktorraum ragenden Enden der Außenrohre geschlossen und die entsprechenden Enden der Innenrohre offen sind,
20 dergestalt, daß der Wärmeträger über einen außerhalb des Reaktorraums angeordneten Zuführraum in die Innenrohre einströmt und über den Raum zwischen Innen- und Außenrohren sowie einen Abführraum ausströmt. Sie sind durch ein hohes Verhältnis von Wärmetauscherfläche zu Volumen des Reaktionsraumes gekennzeichnet und sind somit besonders effektiv für die Abfuhr der freiwerdenden
25 Reaktionswärme. Das beschriebene Verfahren hat jedoch den Nachteil, daß die Phasendurchmischung nicht sichergestellt ist, mit der Folge, daß verstärkt unkontrollierbare Nebenreaktionen unter Ausbeuteverminderung ablaufen und daß sich die Kühlflächen mit harzartigen Verbindungen und/oder Katalysatoranteilen belegen.

Aufgabe der Erfindung ist es daher, einen Reaktor für Gas-Flüssig-, Flüssig-Flüssig- oder Gas-Flüssig-Fest-Reaktionen zur Verfügung zu stellen, der eine intensive Phasendurchmischung im gesamten Reaktionsvolumen und somit eine erhöhte Wirtschaftlichkeit und eine verbesserte Raum-Zeit-Ausbeute sicherstellt.

5

In einer Ausgestaltung ist es Aufgabe der Erfindung, eine weitgehende Isothermie des Reaktors zu gewährleisten, d.h. einen sehr kleinen Temperaturgradienten über die Reaktorhöhe.

- 10 Weiterhin ist es Aufgabe der Erfindung, ein kontinuierliches Verfahren für Gas-Flüssig-, Flüssig-Flüssig- oder Gas-Fest-Reaktionen unter Verwendung eines erfindungsgemäßen Reaktors bereitzustellen.

- 15 Die Erfindung geht aus von einem Reaktor für Gas-Flüssig- oder Gas-Flüssig-Fest-Reaktionen in hochzylindrischer Bauform mit einer im oberen Reaktorbereich angeordneten, nach unten gerichteten Strahldüse, über die die Edukte und das Reaktionsgemisch zugeführt werden sowie mit einem Abzug bevorzugt im unteren Reaktorbereich, über den das Reaktionsgemisch in einem äußeren Kreislauf mittels einer Pumpe der Strahldüse erneut zugeführt wird.

20

- Die Lösung ist dann dadurch gekennzeichnet, daß im Reaktor ein konzentrisches Leitrohr angeordnet ist, das sich im wesentlichen über die gesamte Länge des Reaktors mit Ausnahme der Reaktorenden erstreckt und eine Querschnittsfläche im Bereich von einem Zehntel bis zur Hälfte der Querschnittsfläche des Reaktors
25 aufweist, und daß die Strahldüse oberhalb des oberen Endes des Leitrohrs, bevorzugt um ein Achtel des Leitrohrdurchmessers bis zu einem Leitrohrdurchmesser beabstandet, angeordnet ist oder in das Leitrohr, in eine Tiefe bis zu mehreren Leitrohrdurchmessern, eintaucht, und daß in den Ringraum ein Wärmetauscher,

insbesondere ein Wärmetauscher mit zwischen Böden eingeschweißten Wärmetauschrohren, die vorzugsweise parallel zum Leitrohr angeordnet sind, integriert ist.

- 5 Es wurde demgemäß gefunden, daß die Stoff- und Wärmetransportbegrenzung weitgehend bis vollständig ausgeschaltet wird, und daß somit die Gesamtreaktion rein kinetisch kontrolliert abläuft.

- 10 Die erfindungsgemäße Lösung, wonach der überwiegende Teil des Reaktionsgemisches in einer gerichteten internen Schlaufenströmung geführt und lediglich ein geringer Anteil des Reaktionsgemisches, der für den Antrieb der Schlaufenströmung notwendig ist, extern umgepumpt wird, ist energetisch vorteilhaft.

- 15 Dadurch, daß im gesamten Reaktorvolumen die Strömungsbedingungen eindeutig definiert sind, d.h. daß die für die Auslegung des Reaktors wichtigen Größen: Strömungsgeschwindigkeiten, Gasgehalte, Rückvermischung, Mischzeit und Verweilzeitverhalten ausreichend präzise erfaßt werden können, ist der erfindungsgemäße Reaktor unmittelbar scale-up-fähig.

- 20 Der Begriff Strahldüse bezeichnet in bekannter Weise ein sich in Strömungsrichtung verjüngendes Rohr; die Strahldüse kann als Dreistoff- oder Zweistoffdüse, gegebenenfalls mit Impulsaustauschrohr und Diffusor oder als Einstoffdüse ausgebildet sein.

- 25 Bei der Verwendung einer Einstoffdüse kann zusätzlich die Einleitung eines oder mehrerer gasförmiger Reaktanden in den Gasraum am Reaktorkopf oder über geeignete Vorrichtungen, bevorzugt über ein oder mehrere, insbesondere ein bis drei Ringrohre, mit einer Vielzahl von Öffnungen, insbesondere im unteren

Reaktorbereich oder über die Reaktorhöhe verteilt, in den Ringraum zwischen Leitrohr und Reaktorinnenwand erfolgen. Die Gaszufuhr kann jedoch auch unterhalb der Prallplatte oder direkt in den Gasraum oberhalb der Einstoffdüse erfolgen. Der durch die Gasblasen erzeugte Auftrieb unterstützt den Antrieb der internen
5 Schlaufenströmung.

Der Abzug für das Reaktionsgemisch kann grundsätzlich auf jeder beliebigen Reaktorhöhe, bevorzugt im unteren Reaktorbereich, besonders bevorzugt am Boden des Reaktors angeordnet sein. Über den Abzug wird ein Teil des Reaktionsgemisches
10 mittels einer Pumpe abgezogen und gegebenenfalls nach Abtrennung fester Anteile, insbesondere von suspendiertem Katalysator, beispielsweise in einem Querstromfilter, der Strahldüse im oberen Reaktorteil erneut zugeführt.

Der Begriff Leitrohr bezeichnet vorliegend ein im vertikalen zylindrischen Reaktor
15 konzentrisch angeordnetes Innenrohr, das sich nahezu über die gesamte Reaktorlänge mit Ausnahme der Reaktorenden erstreckt. Das obere Leitrohrende muß stets mit Flüssigkeit bedeckt sein, d.h. es muß sich unterhalb des oberen Gasabscheideraums befinden, wobei dieser erfindungsgemäß etwa 3 bis 15% des Gesamtvolumens des Reaktors, insbesondere 5 bis 7% des Gesamtvolumens des
20 Reaktors einnimmt. Das obere Ende des Leitrohrs muß von der nach unten gerichteten und bevorzugt auf derselben Vertikalen wie das Leitrohr angeordneten Strahldüse beabstandet sein. Durch die relative Positionierung von Düse/Leitrohr und dem inneren Füllstand kann der Gasgehalt im Reaktionsgemisch eingestellt werden.

25

Die Strahldüse mündet bevorzugt im Bereich des Trennspiegels Gas-Flüssigkeit. In diesem Fall kann der Gasgehalt im Reaktionsvolumen durch Anheben oder Absenken des Innenstands in gewissen Grenzen verändert werden. Wird beispielsweise die Düse durch Anheben des Innenstands in die Flüssigkeit

eingetaucht, so nimmt der Gasgehalt im Reaktionsgemisch kleinere Werte an, wogegen durch Absenken des Innenstands unterhalb der Mündung der Strahldüse größere Gasmengen in das Reaktionsvolumen angesaugt werden.

- 5 Das Leitrohr weist eine Querschnittsfläche bevorzugt im Bereich von einem Zehntel bis zur Hälfte der Querschnittsfläche des Reaktors auf. Das untere Ende des Leitrohrs endet im unteren Ende des Reaktorbereichs, bevorzugt im Bereich des zylindrischen Endes des Reaktors.
- 10 Im Ringraum zwischen Leitrohr und Reaktorinnenwand ist ein Wärmetauscher, insbesondere ein Wärmetauscher mit zwischen Böden eingeschweißten Wärmetauscherrohren, die vorzugsweise parallel zum Leitrohr angeordnet sind, integriert. Dadurch wird besonders für Reaktionen mit großer Wärmetönung eine hohe Isothermie des Reaktors gewährleistet, d.h. ein sehr kleiner Temperaturgradient
- 15 über die Reaktorhöhe, da die Reaktionswärme am Ort ihrer Entstehung abgeführt wird. Zudem ist die Sicherheit des Verfahrens gegenüber einer Kühlung im äußeren Kreislauf verbessert, da die Reaktorkühlung auch dann noch funktioniert, wenn die Pumpe für den äußeren Kreislauf ausfällt. Bei Ausfall der Kühlwasserversorgung funktioniert die Kühlung noch bis zur Verdampfung des gesamten Kühlwassers in
- 20 den Wärmetauscherrohren.

Es ist jedoch auch möglich, in den Ringraum Wärmetauscher von anderer Bauform, insbesondere Fieldrohr-Wärmetauscher, zu integrieren.

- 25 Der Reaktor weist in bevorzugter Weise einen Schlankheitsgrad, d.h. ein Verhältnis von Länge (l) zu Durchmesser (d), von 3 bis 10 bevorzugt von 6 bis 10, auf. Der Reaktor kann mit diesem hohen Schlankheitsgrad aufgrund der gerichteten internen Schlaufenströmung gebaut werden. Als Folge des hohen Schlankheitsgrades kann

der Gasgehalt im Reaktionsvolumen bereits durch kleine Änderungen des Flüssigkeitsinnenstands im Reaktor verändert werden, weil dadurch die relative Positionierung von Strahldüse und Gas-Flüssigkeits-Trennspiegel verändert wird.

- 5 Das Verhältnis der Durchmesser von Leitrohr und Reaktor liegt bevorzugt im Bereich von 0,25 bis 0,5, besonders bevorzugt im Bereich von 0,28 bis 0,33.

In bevorzugter Weise ist im unteren Reaktorbereich, unterhalb des unteren Endes des Leitrohrs, von diesem bevorzugt um einen bis zwei Leitrohrdurchmesser
10 beabstandet, im wesentlichen senkrecht zum Leitrohr, eine Prallplatte angeordnet. Die Prallplatte ist bevorzugt scheibenförmig ausgebildet, mit einem Durchmesser größer als der Durchmesser des Leitrohrs und kleiner als der Innendurchmesser des Reaktors und mit einer Dicke, die durch die mechanische Festigkeit des bevorzugt metallischen Werkstoffs bestimmt ist, d.h. im Bereich von etwa 5-10 mm. Die
15 Prallplatte hat neben der Funktion der Strömungsumkehr die Aufgabe, zu verhindern, daß Gasblasen in den äußeren Kreislauf mitgerissen werden und die Pumpe beschädigen.

Erfindungsgemäß wird auch ein kontinuierliches Verfahren zur Durchführung von
20 Gas-Flüssig- oder Gas-Flüssig-Fest-Reaktionen wie in einem vorstehend beschriebenen Reaktor zur Verfügung gestellt, wobei der überwiegende Teil des Reaktionsgemisches, entsprechend dem 2- bis 30-fachen, bevorzugt dem 5- bis 10-fachen des Volumenstroms des extern umgepumpten Reaktionsgemisches in einer internen Schlaufenströmung das Leitrohr von oben nach unten und den Ringraum
25 zwischen Leitrohr und Reaktorinnenwand von unten nach oben durchströmt. Die interne Schlaufenströmung bezeichnet vorliegend einen Kreislauf des Reaktionsgemisches innerhalb des Reaktors; sie wird durch den Flüssigkeitsstrahl angetrieben, den die im oberen Reaktorbereich angeordnete, nach unten gerichtete Strahldüse erzeugt. Dieser nach unten gerichtete Flüssigkeitsstrahl erzeugt eine

Abwärtsströmung im Leitrohr, die nach Verlassen des Leitrohrs im unteren Reaktorbereich umgelenkt wird und im Ringraum zwischen Leitrohr und Reaktorinnenwand nach oben gerichtet ist. Am oberen Ende des Leitrohrs wird die Flüssigkeit durch den Antriebsstrahl erneut angesaugt, mit diesem vermischt und
5 wieder nach unten gelenkt. Die Schlaufenströmung kann durch die Zugabe von einem oder mehreren gasförmigen Reaktanden in den Ringraum zwischen Leitrohr und Reaktorinnenwand durch Ausnutzung der Gasauftriebskraft unterstützt werden.

Durch den Flüssigkeitsstrahl wird das in der Zweiphasenströmung in Form von Gasblasen vorhandene zirkulierende Gas am oberen Ende des Leitrohrs, in der Nähe
10 der Strahldüse, dispergiert, wodurch sehr hohe Stoffübergangskoeffizienten und volumenspezifische Phasengrenzflächen erreicht werden. Weiterhin wird durch den Flüssigkeitsstrahl das Gas aus dem Gasabscheideraum im oberen Reaktorteil angesaugt und dispergiert.

15

Die Vorrichtung und das Verfahren gemäß der Erfindung sind für insbesondere stark exotherme Gas-Flüssig-, Flüssig-Flüssig- oder Gas-Flüssig-Fest-Reaktionen, vorzugsweise für suspensionskatalysierte Hydrierungen, organische Oxidierungen, Ethoxilierungen, Propoxilierungen oder Aldolkondensationen geeignet.

20

Die Anwendung des Verfahrens und der Vorrichtung gemäß der Erfindung auf die obengenannten Reaktionen ermöglicht bessere Raumzeitausbeuten, mildere Reaktionsbedingungen, insbesondere bezüglich des Druckes sowie gegebenenfalls der Temperatur, verminderte Reaktionsvolumen, niedrigere Fertigungskosten durch
25 Energiesparung, gegebenenfalls niedrigere Investitionskosten sowie verbesserte Sicherheitsaspekte.

Die Erfindung wird im folgenden anhand einer Figur und eines Ausführungsbeispiels näher erläutert.

Die einzige Figur zeigt einen Längsschnitt durch einen erfindungsgemäßen Reaktor 1 mit einer Strahldüse 2 im oberen Reaktorbereich, über die die Edukte und das Reaktionsgemisch zugeführt werden sowie mit in einem Abzug 3 im unteren Reaktorbereich, über den das Reaktionsgemisch in einem äußeren Kreislauf mittels einer Pumpe P der Strahldüse 2 erneut zugeführt wird. Im Reaktor 1 ist ein konzentrisches Leitrohr 4 angeordnet, das sich über den größten Teil der Reaktorlänge, mit Ausnahme der Reaktorenden, erstreckt. Die Figur zeigt unterhalb des unteren Endes des Leitrohres 4 eine Prallplatte 7, die bevorzugt vorgesehen sein kann. Ebenso ist bevorzugt ein Wärmetauscher vorgesehen, der in der Figur als sogenannter Fieldrohr-Wärmetauscher mit Zuführraum 5 und Abführraum 5' für das Kühlmittel K sowie mit Wärmetauscherrohren 6 dargestellt ist. Gemäß einer weiter bevorzugten Ausführungsform kann der Wärmetauscher in Form von zwischen Böden eingeschweißten Wärmetauscherrohren, die bevorzugt parallel zum Leitrohr 4 angeordnet sind, ausgebildet sein.

Ausführungsbeispiel

20

In einem Reaktor gemäß Figur 1 mit einem Reaktionsvolumen von etwa 0,05 m³, der mit 36 parallel angeordneten Fieldrohren versehen ist, die insgesamt eine Kühlfläche von etwa 2,5 m² aufweisen und in die ein Kühlwasserstrom von etwa 1 m³/h und einer Temperatur von etwa 35°C eingeleitet wird, werden mittels einer Dosierpumpe 30,3 kg/h Propionaldehyd bei 75°C in ein schnell fließendes Gemisch aus etwa 84 % Propionsäure, circa 15 % Propionaldehyd und maximal 1 % Nebenprodukte, insbesondere organische Säuren und Alkohole, eingebracht. Durch gleichzeitiges Einleiten von 31 Nm³/h Luft wird im Reaktor ein Druck von 23 bar eingestellt. Zur Aufrechterhaltung der Schlaufenströmung wird im externen Produktkreislauf ein

Volumenstrom von 2,5 m³/h umgewälzt. In der Strahldüse herrscht ein Druck von rund 3 bar über Reaktordruck, der spezifische Leistungseintrag beträgt etwa 5 kW/m³.

- 5 Die Reaktion verläuft unter nahezu isothermen Bedingungen, da die Reaktionswärme am Ort ihrer Entstehung abgeführt wird. Die maximale Reaktionstemperatur im unteren Drittel des Reaktors beträgt 76°C.

- Ein Teilstrom von 38,8 kg/h des Reaktionsgemisches mit 84 % Propionsäure, circa
10 15 % Propionaldehyd und weniger als 1 % Nebenprodukten, insbesondere organische Säuren und Alkoholen, wird kontinuierlich abgezogen. Dies entspricht einer Raumzeitausbeute von 650 kg/m³h. Der nicht umgesetzte Propionaldehyd kann thermisch, insbesondere destillativ abgetrennt oder in einer Kaskade von zwei hintereinander geschalteten erfindungsgemäßen Reaktoren unter zusätzlicher
15 Verwendung eines Reaktionsrohres weiter abreagiert werden. Der Gesamtumsatz an Propionaldehyd beträgt bei Verwendung einer Kaskade von zwei erfindungsgemäßen Reaktoren 98,7 % bei einer Selektivität von ca. 96 %.

Patentansprüche

1. Reaktor (1) in hochzylindrischer Bauform zur kontinuierlichen Durchführung
5 von Gas-Flüssig-, Flüssig-Flüssig- oder Gas-Flüssig-Fest-Reaktionen, mit einer
im oberen Reaktorbereich angeordneten, nach unten gerichteten Strahldüse (2),
über die die Edukte und das Reaktionsgemisch zugeführt werden sowie mit
einem Abzug (3) bevorzugt im unteren Reaktorbereich, über den das
Reaktionsgemisch in einem äußeren Kreislauf mittels einer Pumpe (P) der
10 Strahldüse (2) erneut zugeführt wird, dadurch gekennzeichnet, daß im
Reaktor (1) ein konzentrisches Leitrohr (4) angeordnet ist, das sich im wesent-
lichen über die gesamte Länge des Reaktors (1) mit Ausnahme der Reakto-
renden erstreckt und eine Querschnittsfläche im Bereich von einem Zehntel bis
zur Hälfte der Querschnittsfläche des Reaktors (1) aufweist und daß die
15 Strahldüse (2) oberhalb des oberen Endes des Leitrohrs (4), bevorzugt um ein
Achtel des Leitrohrdurchmessers bis zu einem Leitrohrdurchmessers
beabstandet, angeordnet ist oder in das Leitrohr (4), in eine Tiefe bis zu
mehreren Leitrohrdurchmessern, eintaucht, und daß in den Ringraum ein
Wärmetauscher, insbesondere ein Wärmetauscher mit zwischen Böden
20 eingeschweißten Wärmetauschrohren, die vorzugsweise parallel zum Leitrohr
angeordnet sind, integriert ist.
2. Reaktor (1) nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Strahldüse (2)
als Einstoffdüse ausgebildet ist und daß gegebenenfalls zusätzlich eine
25 Vorrichtung für die Zuführung von einem oder mehreren gasförmigen
Reaktanden, bevorzugt ein oder mehrere, insbesondere ein bis drei Ringrohre,
mit einer Vielzahl von Öffnungen, insbesondere im unteren Reaktorbereich
oder über die Reaktorhöhe verteilt, in den Ringraum zwischen Leitrohr (4) und
Reaktorinnenwand, vorgesehen ist (sind).

3. Reaktor (1) nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Strahldüse (2) als Dreistoff- oder Zweistoffdüse ausgebildet ist.
- 5 4. Reaktor (1) nach einem der Ansprüche 1 bis 3, gekennzeichnet durch einen Schlankheitsgrad l/d von drei bis zehn, bevorzugt von sechs bis zehn.
5. Reaktor (1) nach einem der Ansprüche 1 oder 4, dadurch gekennzeichnet, daß das Verhältnis der Durchmesser von Leitrohr (4) und Reaktor (1) im Bereich
10 von 0,25 bis 0,5, besonders bevorzugt im Bereich von 0,28 bis 0,33, liegt.
6. Reaktor (1) nach einem Ansprüche von 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß im Reaktorbereich unterhalb des unteren Endes des Leitrohrs (4) eine Prallplatte (6), bevorzugt um einen Leitrohrdurchmesser beabstandet, angeordnet ist.
15
7. Kontinuierliches Verfahren zur Durchführung von Gas-Flüssig- oder Gas-Flüssig-Fest-Reaktionen in einem Reaktor (1) nach einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß der überwiegende Teil des Reaktionsgemisches, entsprechend dem 2- bis 30-fachen, bevorzugt dem 5- bis
20 10-fachen des Volumenstroms des extern umgepumpten Reaktionsgemisches in einer internen Schlaufenströmung des Leitrohr (4) von oben nach unten und den Ringraum zwischen Leitrohr (4) und Reaktorinnenwand von unten nach oben durchströmt.
- 25 8. Verwendung der Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 6 oder des Verfahrens nach Anspruch 8 für insbesondere stark exotherme Gas-Flüssig-

oder Gas-Flüssig-Fest-Reaktionen, vorzugsweise für Hydrierungen, Oxidierungen, Ethoxilierungen, Propoxilierungen, Hydroformylierungen oder Aldolkondensationen.

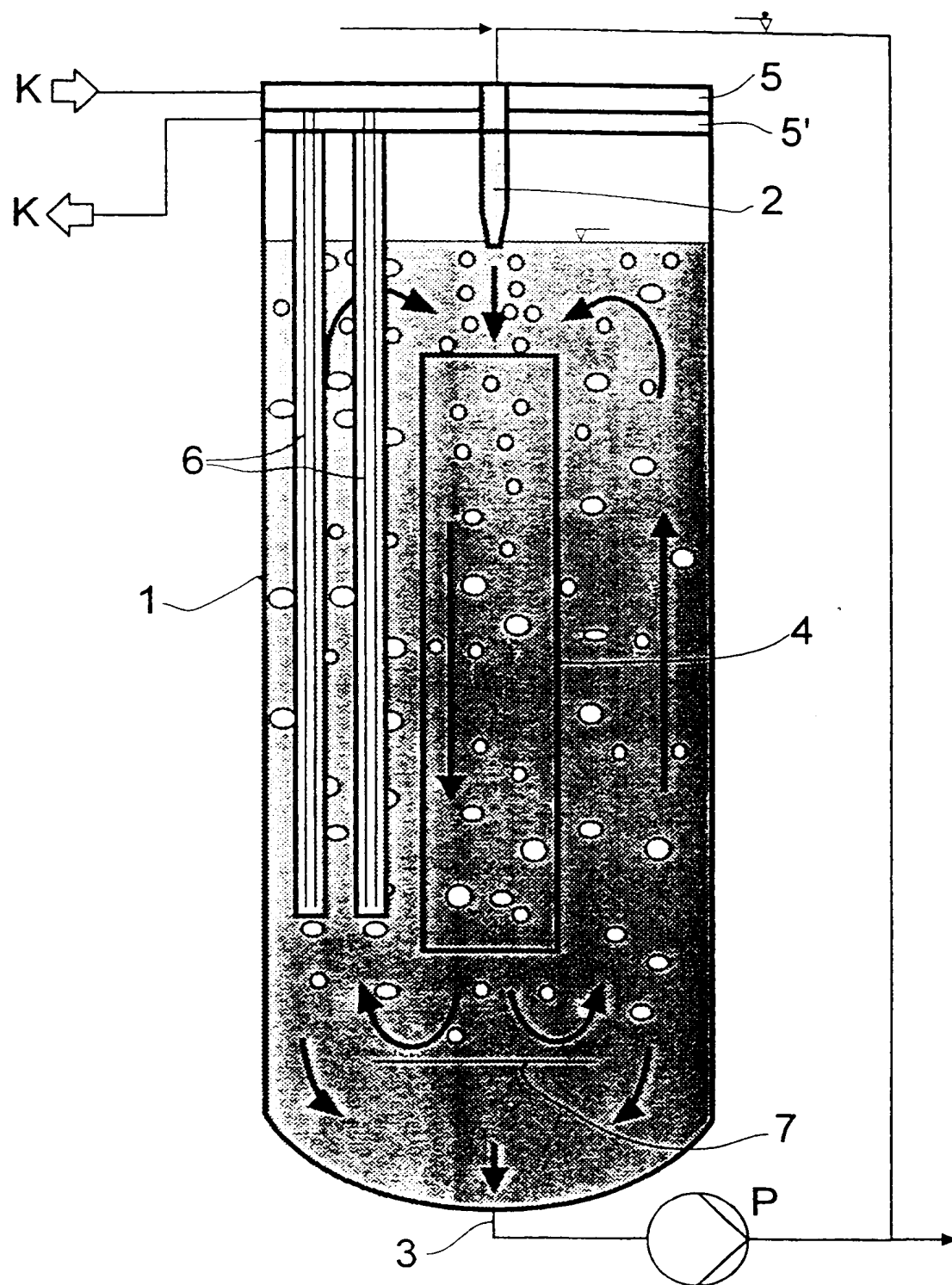


Fig 1

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Intern. Appl. No.

PCT/EP 99/09059

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 B01J8/22 B01J10/00 B01J19/24

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 B01J

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 3 723 545 A (NAGEL O, PLATZ R, FUCHS W) 27 March 1973 (1973-03-27) the whole document	1-5, 7, 8
Y	US 5 154 898 A (AJINKYA MILIND B, KOROS ROBERT M, TARMY BARRY L) 13 October 1992 (1992-10-13) column 1, line 62 -column 3, line 11 claims 1-5; figures 1,3	1, 2, 4-8
Y	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 012, no. 258 (C-513), 20 July 1988 (1988-07-20) & JP 63 043920 A (HITACHI LTD; OTHERS: 01), 25 February 1988 (1988-02-25) abstract	1, 2, 4-8
	— —/— —	

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.☒ Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"Z" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

13 March 2000

Date of mailing of the international search report

21/03/2000

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 661 epo nl,
Fax (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Vlassis, M

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Interr. Int. Application No
PCT/EP 99/09059

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	GB 1 013 888 A (THE POWER-GAS CORPORATION LIMITED) 22 December 1965 (1965-12-22) page 4, line 68 -page 5, line 25 claims 1-26; figure 5 -----	1,6-8
A	US 4 234 560 A (NAGEL OTTO ET AL) 18 November 1980 (1980-11-18) the whole document -----	1,4-6

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

Intern. Appl. No.

PCT/EP 99/09059

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 3723545 A	27-03-1973	NONE	
US 5154898 A	13-10-1992	GB 2222098 A, B JP 2111433 A US 5190733 A US 5340549 A	28-02-1990 24-04-1990 02-03-1993 23-08-1994
JP 63043920 A	25-02-1988	NONE	
GB 1013888 A		DE 1442821 A	05-12-1968
US 4234560 A	18-11-1980	DE 2645780 A BE 859464 A FR 2366868 A GB 1588330 A IT 1091302 B JP 53046480 A NL 7710815 A	13-04-1978 06-04-1978 05-05-1978 23-04-1981 06-07-1985 26-04-1978 11-04-1978

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Intern. nales Aktenzeichen

PCT/EP 99/09059

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 7 B01J8/22 B01J10/00 B01J19/24

Nach der internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 B01J

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	US 3 723 545 A (NAGEL O, PLATZ R, FUCHS W) 27. März 1973 (1973-03-27) das ganze Dokument	1-5, 7, 8
Y	US 5 154 898 A (AJINKYA MILIND B, KOROS ROBERT M, TARMY BARRY L) 13. Oktober 1992 (1992-10-13) Spalte 1, Zeile 62 - Spalte 3, Zeile 11 Ansprüche 1-5; Abbildungen 1, 3	1, 2, 4-8
Y	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 012, no. 258 (C-513), 20. Juli 1988 (1988-07-20) & JP 63 043920 A (HITACHI LTD; OTHERS: 01), 25. Februar 1988 (1988-02-25) Zusammenfassung	1, 2, 4-8

-/-

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

13. März 2000

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

21/03/2000

Name und Postanschrift der internationalen Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3018

Bevollmächtigter Beauftragter

Vlassis, M

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	GB 1 013 888 A (THE POWER-GAS CORPORATION LIMITED) 22. Dezember 1965 (1965-12-22) Seite 4, Zeile 68 -Seite 5, Zeile 25 Ansprüche 1-26; Abbildung 5 —	1,6-8
A	US 4 234 560 A (NAGEL OTTO ET AL) 18. November 1980 (1980-11-18) das ganze Dokument —	1,4-6

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Intern: des Aktenzeichens

PCT/EP 99/09059

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument		Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung
US 3723545	A	27-03-1973	KEINE		
US 5154898	A	13-10-1992	GB	2222098 A, B	28-02-1990
			JP	2111433 A	24-04-1990
			US	5190733 A	02-03-1993
			US	5340549 A	23-08-1994
JP 63043920	A	25-02-1988	KEINE		
GB 1013888	A		DE	1442821 A	05-12-1968
US 4234560	A	18-11-1980	DE	2645780 A	13-04-1978
			BE	859464 A	06-04-1978
			FR	2366868 A	05-05-1978
			GB	1588330 A	23-04-1981
			IT	1091302 B	06-07-1985
			JP	53046480 A	26-04-1978
			NL	7710815 A	11-04-1978

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

Absender: MIT DER INTERNATIONALEN VORLÄUFIGEN
PRÜFUNG BEAUFTRAGTE BEHÖRDE

09 / 831 402
PCT

An:

ISENBRUCK, Günter
BARDEHLE PAGENBERG DOST
ALTENBURG GEISSLER ISENBRUCK
Theodor-Heuss-Anlage 12
D-68165 Mannheim
ALLEMAGNE

MITTEILUNG ÜBER DIE ÜBERSENDUNG
DES INTERNATIONALEN VORLÄUFIGEN
PRÜFUNGSBERICHTS
(Regel 71.1 PCT)

Absenddatum
(Tag/Monat/Jahr)

27.12.2000

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts
NAE19980196PC

WICHTIGE MITTEILUNG

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP99/09059

Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr)
23/11/1999

Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr)
26/11/1998

Anmelder

BASF AKTIENGESELLSCHAFT et al.

1. Dem Anmelder wird mitgeteilt, daß ihm die mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragte Behörde hiermit den zu der internationalen Anmeldung erstellten internationalen vorläufigen Prüfungsbericht, gegebenenfalls mit den dazugehörigen Anlagen, übermittelt.
2. Eine Kopie des Berichts wird - gegebenenfalls mit den dazugehörigen Anlagen - dem Internationalen Büro zur Weiterleitung an alle ausgewählten Ämter übermittelt.
3. Auf Wunsch eines ausgewählten Amtes wird das Internationale Büro eine Übersetzung des Berichts (jedoch nicht der Anlagen) ins Englische anfertigen und diesem Amt übermitteln.
4. **ERINNERUNG**

Zum Eintritt in die nationale Phase hat der Anmelder vor jedem ausgewählten Amt innerhalb von 30 Monaten ab dem Prioritätsdatum (oder in manchen Ämtern noch später) bestimmte Handlungen (Einreichung von Übersetzungen und Entrichtung nationaler Gebühren) vorzunehmen (Artikel 39 (1)) (siehe auch die durch das Internationale Büro im Formblatt PCT/IB/301 übermittelte Information).

Ist einem ausgewählten Amt eine Übersetzung der internationalen Anmeldung zu übermitteln, so muß diese Übersetzung auch Übersetzungen aller Anlagen zum internationalen vorläufigen Prüfungsbericht enthalten. Es ist Aufgabe des Anmelders, solche Übersetzungen anzufertigen und den betroffenen ausgewählten Ämtern direkt zuzuleiten.

Weitere Einzelheiten zu den maßgebenden Fristen und Erfordernissen der ausgewählten Ämter sind Band II des PCT-Leitfadens für Anmelder zu entnehmen.

Name und Postanschrift der mit der internationalen Prüfung beauftragten Behörde



Europäisches Patentamt
D-80298 München
Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d
Fax: +49 89 2399 - 4465

Bevollmächtigter Bediensteter

Michaleczek, N

Tel. +49 89 2399-7254



VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts NAE19980196PC	WEITERES VORGEHEN siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/IPEA/416)	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP99/09059	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 23/11/1999	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Tag) 26/11/1998
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK B01J8/22		
Anmelder BASF AKTIENGESELLSCHAFT et al.		



1. Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.
2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 4 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.

☒ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).

Diese Anlagen umfassen insgesamt 3 Blätter.

3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:

- I ☒ Grundlage des Berichts
- II ☐ Priorität
- III ☐ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
- IV ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
- V ☒ Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- VI ☐ Bestimmte angeführte Unterlagen
- VII ☐ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
- VIII ☒ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags 23/06/2000	Datum der Fertigstellung dieses Berichts 27.12.2000
Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde:  Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter Buesing, G Tel. Nr. +49 89 2399 8356 

I. Grundlage des Berichts

1. Dieser Bericht wurde erstellt auf der Grundlage (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt, weil sie keine Änderungen enthalten.*):

Beschreibung, Seiten:

1-10 ursprüngliche Fassung

Patentansprüche, Nr.:

1-9 eingegangen am 14/12/2000 mit Schreiben vom 12/12/2000

Zeichnungen, Blätter:

1/1 ursprüngliche Fassung

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- ☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP99/09059

- ☐ Beschreibung, Seiten:
☐ Ansprüche, Nr.:
☐ Zeichnungen, Blatt:

5. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen).

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

1. Feststellung

Neuheit (N)	Ja: Ansprüche	1 - 9
	Nein: Ansprüche	
Erfinderische Tätigkeit (ET)	Ja: Ansprüche	1 - 9
	Nein: Ansprüche	
Gewerbliche Anwendbarkeit (GA)	Ja: Ansprüche	1 - 9
	Nein: Ansprüche	

2. Unterlagen und Erklärungen
siehe Beiblatt

VIII. Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Zur Klarheit der Patentansprüche, der Beschreibung und der Zeichnungen oder zu der Frage, ob die Ansprüche in vollem Umfang durch die Beschreibung gestützt werden, ist folgendes zu bemerken:
siehe Beiblatt

Abschnitt V:

1. Die Erfindung betrifft einen 3-Phasen-Schlaufen-Reaktor, in dem Wärmetauscherrohre integriert sind.
2. Nächstliegender Stand der Technik ist US-A-3 723 545 (nachfolgend D1 genannt), aus der ein Schlaufenreaktor mit einer Rohrschlange als Wärmetauscher bekannt ist. Die Wärmetauscher-Rohrwicklung hat in axialer Richtung unterschiedliche Durchmesser, so daß in axialer Projektion ein Großteil des Strömungsquerschnitts blockiert ist.
3. Der beanspruchte Reaktor unterscheidet sich durch die axiale Ausrichtung der Wärmetauscherrohre. Dadurch ergibt sich eine reduzierte Behinderung der Strömung im Reaktor, was sich insbesondere bei Dreiphasengemischen bemerkbar macht. Durch die Erfindung wird daher gegenüber D1 das Problem der Verbesserung Strömungseigenschaften im Reaktor gelöst.
4. Dem vorliegenden Stand der Technik sind keine Hinweise zu entnehmen, die den einschlägigen Fachmann dazu veranlassen würden, den in D1 gezeigten Wärmetauscher durch die beanspruchte Anordnung zu ersetzen. Daher kann neben der Neuheit auch eine erfinderische Tätigkeit anerkannt werden.

Abschnitt VIII:

1. In Anspruch 6 sollte das Bezugszeichen für die Prallplatte nicht (6), sondern (7) sein. In Anspruch 8. Zeile 5 sollte "des Leitrohr" durch "das Leitrohr" ersetzt werden. Anspruch 9 ist durch das Wort "insbesondere" unklar. Da die nachfolgenden Verwendungsfälle als optimale Merkmale gelesen werden können, betrifft Anspruch in der derzeitigen Fassung 9 die allgemeine Verwendung der Vorrichtung bzw. des Verfahrens ohne Einschränkung auf spezielle Anwendungen.

5

Patentansprüche

1. Reaktor (1) in hochzylindrischer Bauform zur kontinuierlichen Durchführung von Gas-Flüssig-Fest-Reaktionen, mit einer im oberen Reaktorbereich angeordneten, nach unten gerichteten Strahldüse (2), über die die Edukte und das Reaktionsgemisch zugeführt werden sowie mit einem Abzug (3) bevorzugt im unteren Reaktorbereich, über den das Reaktionsgemisch in einem äußeren Kreislauf mittels einer Pumpe (P) der Strahldüse (2) erneut zugeführt wird, wobei im Reaktor (1) ein konzentrisches Leitrohr (4) angeordnet ist, das sich im wesentlichen über die gesamte Länge des Reaktors (1) mit Ausnahme der Reaktorenden erstreckt und eine Querschnittsfläche im Bereich von einem Zehntel bis zur Hälfte der Querschnittsfläche des Reaktors (1) aufweist und wobei die Strahldüse (2) oberhalb des oberen Endes des Leitrohrs (4), bevorzugt um ein Achtel des Leitrohrdurchmessers bis zu einem Leitrohrdurchmessers beabstandet, angeordnet ist oder in das Leitrohr (4), in eine Tiefe bis zu mehreren Leitrohrdurchmessern, eintaucht, und wobei in den Ringraum ein Wärmetauscher mit Wärmetauscherrohren integriert ist, dadurch gekennzeichnet, daß die Wärmetauscherrohre parallel zum Leitrohr (4) angeordnet sind.
2. Reaktor (1) nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die Wärmetauscherrohre des Wärmetauschers zwischen Böden eingeschweißt sind.

- 2 -

3. Reaktor (1) nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß die Strahldüse (2) als Einstoffdüse ausgebildet ist und daß gegebenenfalls zusätzlich eine Vorrichtung für die Zuführung von einem oder mehreren gasförmigen Reaktanden, bevorzugt ein oder mehrere, insbesondere ein bis drei Ringrohre, mit einer Vielzahl von Öffnungen, insbesondere im unteren Reaktorbereich oder über die Reaktorhöhe verteilt, in den Ringraum zwischen Leitrohr (4) und Reaktorinnenwand, vorgesehen ist (sind).
4. Reaktor (1) nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß die Strahldüse (2) als Dreistoff- oder Zweistoffdüse ausgebildet ist.
5. Reaktor (1) nach einem der Ansprüche 1 bis 4, gekennzeichnet durch einen Schlankheitsgrad l/d von drei bis zehn, bevorzugt von sechs bis zehn.
6. Reaktor (1) nach einem der Ansprüche 1 oder 5, dadurch gekennzeichnet, daß das Verhältnis der Durchmesser von Leitrohr (4) und Reaktor (1) im Bereich von 0,25 bis 0,5, besonders bevorzugt im Bereich von 0,28 bis 0,33, liegt.
7. Reaktor (1) nach einem Ansprüche von 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß im Reaktorbereich unterhalb des unteren Endes des Leitrohrs (4) eine Prallplatte (6), bevorzugt um einen Leitrohrdurchmesser beabstandet, angeordnet ist.
8. Kontinuierliches Verfahren zur Durchführung von Gas-Flüssig- oder Gas-Flüssig-Fest-Reaktionen in einem Reaktor (1) nach einem der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, daß der überwiegende Teil des Reaktionsgemisches, entsprechend dem 2- bis 30-fachen, bevorzugt dem 5- bis 10-fachen des Volumenstroms des extern umgepumpten Reaktionsgemisches in einer internen Schlaufenströmung des Leitrohr (4)

- 3 -

von oben nach unten und den Ringraum zwischen Leitrohr (4) und Reaktorinnenwand von unten nach oben durchströmt.

- 5 9. Verwendung der Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 7 oder des Verfahrens nach Anspruch 8 für insbesondere stark exotherme Gas-Flüssig- oder Gas-Flüssig-Fest-Reaktionen, vorzugsweise für Hydrierungen, Oxidierungen, Ethoxilierungen, Propoxilierungen, Hydroformylierungen oder Aldolkondensationen.

Translation

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference NAE19980196PC	FOR FURTHER ACTION See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/EP99/09059	International filing date (day/month/year) 23 November 1999 (23.11.99)	Priority date (day/month/year) 26 November 1998 (26.11.98)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC B01J 8/22, 10/00, 19/24		
Applicant BASF AKTIENGESELLSCHAFT		

<p>1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.</p> <p>2. This REPORT consists of a total of <u>4</u> sheets, including this cover sheet.</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).</p> <p>These annexes consist of a total of <u>3</u> sheets.</p>	
<p>3. This report contains indications relating to the following items:</p> <p>I <input checked="" type="checkbox"/> Basis of the report</p> <p>II <input type="checkbox"/> Priority</p> <p>III <input type="checkbox"/> Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability</p> <p>IV <input type="checkbox"/> Lack of unity of invention</p> <p>V <input checked="" type="checkbox"/> Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement</p> <p>VI <input type="checkbox"/> Certain documents cited</p> <p>VII <input type="checkbox"/> Certain defects in the international application</p> <p>VIII <input checked="" type="checkbox"/> Certain observations on the international application</p>	

RECEIVED
AUG 14 2000
PC 1700

Date of submission of the demand 23 June 2000 (23.06.00)	Date of completion of this report 27 December 2000 (27.12.2000)
Name and mailing address of the IPEA/EP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP99/09059

I. Basis of the report

1. With regard to the **elements** of the international application:*

- ☐ the international application as originally filed
- ☒ the description:
pages _____ 1-10 _____, as originally filed
pages _____, filed with the demand
pages _____, filed with the letter of _____
- ☒ the claims:
pages _____, as originally filed
pages _____, as amended (together with any statement under Article 19
pages _____, filed with the demand
pages _____ 1-9 _____, filed with the letter of _____ 12 December 2000 (12.12.2000)
- ☒ the drawings:
pages _____ 1/1 _____, as originally filed
pages _____, filed with the demand
pages _____, filed with the letter of _____
- ☐ the sequence listing part of the description:
pages _____, as originally filed
pages _____, filed with the demand
pages _____, filed with the letter of _____

2. With regard to the **language**, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.

These elements were available or furnished to this Authority in the following language _____ which is:

- ☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
- ☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
- ☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

3. With regard to any **nucleotide and/or amino acid sequence** disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

- ☐ contained in the international application in written form.
- ☐ filed together with the international application in computer readable form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in written form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.
- ☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.
- ☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

4. ☐ The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages _____
- ☐ the claims, Nos. _____
- ☐ the drawings, sheets/fig _____

5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**

* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

** Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP 99/09059

V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement**1. Statement**

Novelty (N)	Claims	1-9	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims	1-9	YES
	Claims		NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-9	YES
	Claims		NO

2. Citations and explanations

1. The invention concerns a three-phase loop reactor in which heat exchanger pipes are integrated.
2. The closest prior art is US-A-3 723 545 (D1), which describes a loop reactor with a serpentine pipe as heat exchanger. The heat exchanger pipe winding has various diameters in the axial direction, and therefore a large part of the flow cross-section is blocked in the axial projection.
3. The claimed reactor differs therefrom by the axial orientation of the heat exchanger pipes, reducing hindrance to flow inside the reactor, which is particularly perceptible in three-phase mixtures. Consequently, the invention solves in relation to D1 the problem of enhancing flow properties inside the reactor.
4. The available prior art does not contain any indication which could prompt a person skilled in the relevant art to replace the heat exchanger shown in D1 by the claimed arrangement. Consequently, an inventive step can also be recognised besides novelty.

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP 99/09059

VIII. Certain observations on the international application

The following observations on the clarity of the claims, description, and drawings or on the question whether the claims are fully supported by the description, are made:

1. In Claim 6, the reference sign for the baffle plate should be (7), not (6). In Claim 8, line 5, "*des Leitrohr*" should be replaced by "*das Leitrohr*". Claim 9 is made unclear by the expression "in particular". Since the cases of use that follow this expression can be understood to be optimal features, Claim 9 in its present form concerns the general use of the device and method without limitation to special uses.

We claim:

1. A reactor (1) of high cylindrical construction for continuously carrying out
5 gas-liquid, liquid-liquid or gas-liquid-solid reactions, provided with a
downward-directed jet nozzle (2) via which the starting materials and the
reaction mixture are fed in and which is located in the upper region of the
reactor, and provided with an offtake (3), preferably in the lower region of
10 the reactor, via which the reaction mixture is conveyed via an external
circuit back to the jet nozzle (2) by means of a pump (P), wherein a guide
tube (4) which extends essentially over the total length of the reactor (1)
with the exception of the reactor ends and has a cross-sectional area in the
range from one tenth to one half of the cross-sectional area of the reactor
15 (1) is located concentrically in the reactor (1), and the jet nozzle (2) is
located above the upper end of the guide tube (4), preferably at a distance of
from one eighth of the guide tube diameter to one guide tube diameter, or
projects into the guide tube (4) to a depth up to a plurality of guide tube
diameters, and a heat exchanger, in particular a heat exchanger having heat
20 exchange tubes, preferably running parallel to the guide tube, welded in
between plates, is integrated into the annular space.
2. A reactor (1) as claimed in claim 1, wherein the jet nozzle (2) is configured
as a single-fluid nozzle and, optionally, a facility for introducing one or
25 more gaseous reactants, preferably one or more, in particular from one to
three, annular pipes having a plurality of orifices, in particular in the lower
region of the reactor or distributed over the height of the reactor, is (are)
additionally provided in the annular space between guide tube (4) and
interior wall of the reactor.
- 30 3. A reactor (1) as claimed in claim 1, wherein the jet nozzle (2) is configured
as a three-fluid or two-fluid nozzle.
4. A reactor (1) as claimed in any of claims 1 to 3, which has an aspect ratio
35 l/d of from 3 to 10, preferably from 6 to 10.

5. A reactor (1) as claimed in claim 1 or 4, wherein the ratio of the diameters of guide tube (4) and reactor (1) is in the range from 0.25 to 0.5, particularly preferably in the range from 0.28 to 0.33.
- 5 6. A reactor (1) as claimed in any of claims 1 to 5, wherein an impingement plate (6) is located in the region of the reactor below the lower end of the guide tube (4), preferably at a distance of one guide tube diameter.
- 10 7. A continuous process for carrying out gas-liquid or gas-liquid-solid reactions in a reactor (1) as claimed in any of claims 1 to 6, wherein the major part of the reaction mixture, corresponding to from 2 to 30 times, preferably from 5 to 10 times, the volume flow of the reaction mixture pumped around the external circuit flows in an internal loop through the guide tube (4) from the top downward and through the annular space
15 between guide tube (4) and interior wall of the reactor from the bottom upward.
- 20 8. The use of an apparatus as claimed in any of claims 1 to 6 or a process as claimed in claim 8 for, in particular, strongly exothermic gas-liquid or gas-liquid-solid reactions, preferably for hydrogenations, oxidations, ethoxylations, propoxylations, hydroformylations or aldol condensations.

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT
AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

PCT

09 / 831402

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

(Artikel 18 sowie Regeln 43 und 44 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts NAE19980196P	WEITERES VORGEHEN siehe Mitteilung über die Übermittlung des internationalen Recherchenberichts (Formblatt PCT/ISA/220) sowie, soweit zutreffend, nachstehender Punkt 5	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP 99/09059	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 23/11/1999	(Frühestes) Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 26/11/1998
Anmelder BASF AKTIENGESELLSCHAFT et al.		

Dieser internationale Recherchenbericht wurde von der Internationalen Recherchenbehörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 18 übermittelt. Eine Kopie wird dem Internationalen Büro übermittelt.

Dieser internationale Recherchenbericht umfaßt insgesamt 3 Blätter.

☒ Darüber hinaus liegt ihm jeweils eine Kopie der in diesem Bericht genannten Unterlagen zum Stand der Technik bei.

1. Grundlage des Berichts

- a. Hinsichtlich der **Sprache** ist die internationale Recherche auf der Grundlage der internationalen Anmeldung in der Sprache durchgeführt worden, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

☐ Die internationale Recherche ist auf der Grundlage einer bei der Behörde eingereichten Übersetzung der internationalen Anmeldung (Regel 23.1 b)) durchgeführt worden.

- b. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbaren **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale Recherche auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das

☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.

☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerisierter Form eingereicht worden ist.

☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.

☐ bei der Behörde nachträglich in computerisierter Form eingereicht worden ist.

☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.

☐ Die Erklärung, daß die in computerisierter Form erfaßten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

2. ☐ Bestimmte Ansprüche haben sich als nicht recherchierbar erwiesen (siehe Feld I).

3. ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung (siehe Feld II).

4. Hinsichtlich der **Bezeichnung der Erfindung**

☒ wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

☐ wurde der Wortlaut von der Behörde wie folgt festgesetzt:

5. Hinsichtlich der **Zusammenfassung**

☒ wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

☐ wurde der Wortlaut nach Regel 38.2b) in der in Feld III angegebenen Fassung von der Behörde festgesetzt. Der Anmelder kann der Behörde innerhalb eines Monats nach dem Datum der Absendung dieses internationalen Recherchenberichts eine Stellungnahme vorlegen.

6. Folgende Abbildung der **Zeichnungen** ist mit der Zusammenfassung zu veröffentlichen: Abb. Nr. 1

☒ wie vom Anmelder vorgeschlagen

☐ keine der Abb.

☐ weil der Anmelder selbst keine Abbildung vorgeschlagen hat.

☐ weil diese Abbildung die Erfindung besser kennzeichnet.

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 7 B01J8/22 B01J10/00 B01J19/24

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 B01J

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	US 3 723 545 A (NAGEL O, PLATZ R, FUCHS W) 27. März 1973 (1973-03-27) das ganze Dokument ---	1-5, 7, 8
Y	US 5 154 898 A (AJINKYA MILIND B, KOROS ROBERT M, TARMY BARRY L) 13. Oktober 1992 (1992-10-13) Spalte 1, Zeile 62 -Spalte 3, Zeile 11 Ansprüche 1-5; Abbildungen 1,3 ---	1, 2, 4-8
Y	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 012, no. 258 (C-513), 20. Juli 1988 (1988-07-20) & JP 63 043920 A (HITACHI LTD; OTHERS: 01), 25. Februar 1988 (1988-02-25) Zusammenfassung --- -/--	1, 2, 4-8

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen☒ Siehe Anhang Patentfamilie

"Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen"

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfindenscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfindenscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

13. März 2000

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

21/03/2000

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P. B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel: (+31-70) 340-2040, Tx: 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Vlassis, M

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr
A	GB 1 013 888 A (THE POWER-GAS CORPORATION LIMITED) 22. Dezember 1965 (1965-12-22) Seite 4, Zeile 68 -Seite 5, Zeile 25 Ansprüche 1-26; Abbildung 5 -----	1,6-8
A	US 4 234 560 A (NAGEL OTTO ET AL) 18. November 1980 (1980-11-18) das ganze Dokument -----	1,4-6

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 99/09059

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 3723545 A	27-03-1973	NONE	
US 5154898 A	13-10-1992	GB 2222098 A, B	28-02-1990
		JP 2111433 A	24-04-1990
		US 5190733 A	02-03-1993
		US 5340549 A	23-08-1994
JP 63043920 A	25-02-1988	NONE	
GB 1013888 A		DE 1442821 A	05-12-1968
US 4234560 A	18-11-1980	DE 2645780 A	13-04-1978
		BE 859464 A	06-04-1978
		FR 2366868 A	05-05-1978
		GB 1588330 A	23-04-1981
		IT 1091302 B	06-07-1985
		JP 53046480 A	26-04-1978
		NL 7710815 A	11-04-1978

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Assistant Commissioner for Patents
United States Patent and Trademark
Office
Box PCT
Washington, D.C. 20231
ETATS-UNIS D'AMERIQUE

in its capacity as elected Office

Date of mailing (day/month/year) 25 July 2000 (25.07.00)	Applicant's or agent's file reference NAE19980196PC
International application No. PCT/EP99/09059	Priority date (day/month/year) 26 November 1998 (26.11.98)
International filing date (day/month/year) 23 November 1999 (23.11.99)	
Applicant BERG, Stefan et al	

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

☒ in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:

23 June 2000 (23.06.00)

☐ in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:2. The election ☒ was☐ was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland	Authorized officer Pascal Piriou
Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Telephone No.: (41-22) 338.83.38